



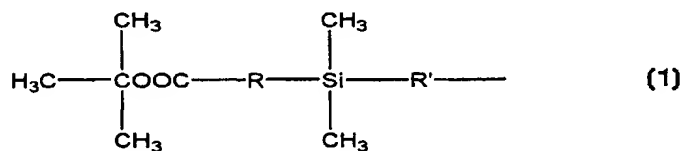
PCT

特許協定に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類7 C08G 77/38, 77/14, 77/06, C08L 83/08</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO00/59987</p> <p>(43) 国際公開日 2000年10月12日(12.10.00)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP00/01955</p> <p>(22) 国際出願日 2000年3月29日(29.03.00)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平11/89441 1999年3月30日(30.03.99) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 新日鐵化学株式会社 (NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD.)(JP/JP) 〒141-0031 東京都品川区西五反田七丁目21番11号 Tokyo, (JP)</p> <p>(72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてののみ) 藤山 毅(FUJIYAMA, Takeshi)(JP/JP) 〒292-0835 千葉県木更津市築地1番地 新日鐵化学株式会社 電子材料開発センター内 Chiba, (JP) 寺本武郎(TERAMOTO, Takero)(JP/JP) 〒141-0031 東京都品川区西五反田七丁目21番11号 新日鐵化学株式会社内 Tokyo, (JP)</p>		<p>(74) 代理人 弁理士 成瀬勝夫, 外(NARUSE, Katsuo et al.) 〒105-0003 東京都港区西新橋2丁目11番5号 セントラル新橋ビル5階 Tokyo, (JP)</p> <p>(81) 指定国 KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>

(54)Title: SILICONE RESIN AND PHOTSENSITIVE RESIN COMPOSITION CONTAINING THE SAME

(54)発明の名称 シリコン樹脂及びこれを含有する感光性樹脂組成物

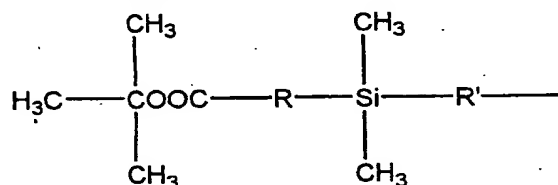


(57) Abstract

A photosensitive silicone resin and a resin composition containing the silicone resin. The silicone resin is characterized by comprising a polyorganosilsesquioxane in which all or part of the molecular ends each has bonded thereto a triorganosilyl group represented by general formula (1). The composition is characterized by being obtained by incorporating an acid generator into this silicone resin. In the formula, R represents a divalent organic group, and R' represents a divalent group or direct bond. The silicone resin and the photosensitive resin composition have excellent performance when used as a resist material for the multilayer resist method or for forming PDP barriers. The resist film formed therefrom has excellent plasma resistance (resistance to O<sub>2</sub>-RIE), and can give a pattern having a high aspect ratio.

(57)要約

この発明は、感光性シリコーン樹脂及びこれを配合した樹脂組成物に関する。この発明のシリコーン樹脂は、ポリオルガノシルセスキオキサンの分子鎖末端の全部又は一部に、下記一般式(1)で表わされるトリオルガノシリル基が結合していることを特徴とするシリコーン樹脂である。そして、この発明の感光性樹脂組成物は、このシリコーン樹脂に酸発生剤を配合したことを特徴とする感光性樹脂組成物である。



(1)

(但し、式中Rは2価の有機基を示し、R'は2価の基又は直結合を示す)

このシリコーン樹脂及び感光性樹脂組成物は、多層レジスト法用のレジスト材やPDP障壁形成用レジスト材として優れた性能を示し、耐プラズマ性(耐 $\text{O}_2$ -RIE)性にも優れ、これを用いてパターンを形成したとき、高いアスペクト比を得ることができる

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GE	グルジア	MA	モロッコ	TD	チャド
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサウ		共和国	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	HR	クロアチア	ML	マリ	TZ	タンザニア
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CH	スイス	IE	アイルランド	MW	マラウイ	US	米国
CI	コートジボワール	IL	イスラエル	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CM	カメルーン	IN	インド	MZ	モザンビーク	VN	ヴェトナム
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	YU	ユーゴスラヴィア
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	ZA	南アフリカ共和国
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノルウェー	ZW	ジンバブエ
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド		
CZ	チェッコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

## 明細書

### シリコン樹脂及びこれを含有する感光性樹脂組成物

## 技術分野

本発明は、レジスト材等として有用なシリコン樹脂及びこれを含有する感光性樹脂組成物に関する。

## 背景技術

微細加工を必要とする半導体デバイスを初めとする各種電子デバイス分野では、デバイスの高密度、高集積化の要求が高まっており、この要求を満たすにはパターンの微細化が必須となってきた。また、プラズマディスプレイパネル（PDP）では、表示放電空間を大きくして高輝度の発光を可能とするため、幅に対して厚みが大きい高アスペクト比の障壁が要求される。

パターンの微細化のための方法として、フォトレジストのパターン形成の際に使用する光の波長を短くする方法がある。しかし、光の短波長化は、焦点深度（DOF）を減少させ、感度やアスペクト比が低下するという問題を生じさせる。このような問題を解決するため、多層レジスト法が提案されている。この方法は、酸素プラズマにより容易にドライエッチングされるノボラック樹脂やポリイミド樹脂のような材料を基板上にスピンコートして平坦化し、この上で耐酸素ドライエッチング性を有するレジストによりパターン形成を行ない、その後酸素プラズマによる異方性エッチングにより下層にパターンを転写する方法である。この方法では、アスペクト

比の高いパターンを得ることができるので、耐酸素プラズマエッチング性を有するレジスト材の検討が盛んになされている。

シリコーン樹脂を利用したレジスト材は、耐酸素プラズマエッチング性に優れることが知られており、例えば特開平 7-56354 号公報や特開平 8-193167 号公報では、ラダー型のポリシロキサンエステルやエポキシ基を含むアルキル置換基を有するポリシロキサンと露光により酸を発生する感光性化合物の両者よりなる組成物が提案されている。また、特開平 6-27671 号や特開平 6-95385 号公報では、ポリシロキサンにジアゾナフトキンスルホニルオキシ基やアジド基が結合した感光性のシリコーン樹脂含有レジスト材組成物が提案されている。

また、プラズマディスプレイパネル (PDP) の障壁 (リブ) に関しては、アスペクト比を高めるために、感光性樹脂に無機粉体を配合したペーストを使用してリブを構成する方法が特開平 10-62981 号公報に記載されている。そして、これに使用されている感光性樹脂はアクリレート等である。

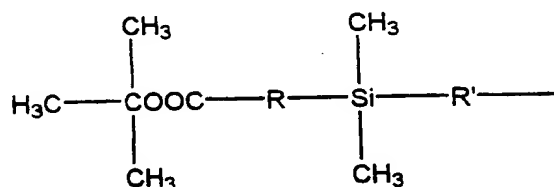
ところで、ポリオルガノシルセスキオキサンは、ポリシロキサンと略称されることがあるが、これには、籠型、ラダー型及びランダム型があることが知られており、これらの構造、製法については、WO 98/41566 号公報、特開昭 50-139900 号公報、特開平 6-329687 号公報、特開平 6-248082 号公報等に詳しく記載されている。このようなポリオルガノシルセスキオキサンの末端に官能基を導入する方法についても、上記 WO 98/41566 号公報等に詳しく記載されている。

本発明は、多層レジスト法用のレジスト材や PDP 障壁形成用レジスト材として優れた性能を示すシリコーン感光性樹脂を提供することを目的と

する。また、本発明は、耐プラズマ性（耐 $O_2$ -RIE）性に優れると共に、これを用いてパターンを形成したとき、高いアスペクト比を得ることができるレジスト材を提供することを目的とする。

### 発明の開示

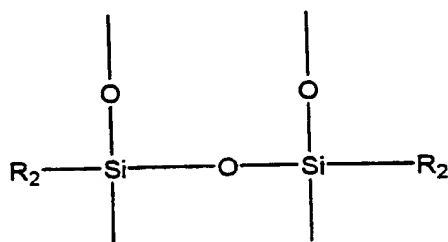
本発明は、ポリオルガノシルセスキオキサンの分子鎖末端の全部又は一部に、下記一般式（１）で表わされるトリオルガノシリル基が結合していることを特徴とするシリコーン樹脂である。



（１）

（但し、式中 $R$ は２価の有機基を示し、 $R'$ は２価の基又は直結合を示す）

また、本発明は、ポリオルガノシルセスキオキサンが下記一般式（２）で表わされる繰り返し単位からなり、且つ、平均の繰り返し数が２～５０００である前記のシリコーン樹脂である。



（２）

（但し、式中 $R_2$ は置換基を有してもよいフェニル基を示す）

また、本発明は、ポリオルガノシルセスキオキサンが、ラダー型、籠形及び籠形とラダー型の混在型から選ばれる１種又は２種以上の混合物であ

り、GPCにより測定されるポリスチレン換算の重量平均分子量 $M_w$ が800～100,000である前記のシリコン樹脂である。

また、本発明は、一般式1において、 $R$ が $-R_1COOX_1-$ 又は $-R_1COOX_1-Si(CH_3)_2-O-$ （但し、 $R_1$ は多価カルボン酸又はその誘導体から生じる2価の残基、 $X_1$ は2価の基を示す）である前記のシリコン樹脂である。

更に、本発明は前記のシリコン樹脂に、露光により酸を発生する酸発生剤を配合したことを特徴とする感光性樹脂組成物である。

更にまた、本発明は、ポリオルガノシルセスキオキサンと、 $X-Si(R_3)_2-Y$ 又は $X-Si(R_3)_2OSi(R_3)_2-Y$ （但し、 $X$ 及び $Y$ はカルボキシル基と結合しうる基又は主鎖ポリオルガノシルセスキオキサンの末端OH基又は末端に生じるOM基（ $M$ はアルカリ金属）と反応可能な官能基、 $R_3$ は1価の有機基を示す）とを反応させて、ポリオルガノシルセスキオキサンの末端の全部又は一部に $X$ 又は $Y$ を有する末端変性ポリオルガノシルセスキオキサンを生成させ、次にこの末端基に $t-BuOOC-R_1-COOH$ （但し、 $t-Bu$ は $t$ -ブチル基を、 $R_1$ は多価カルボン酸又はその誘導体の残基を示す）を反応させて前記のシリコン樹脂を製造する方法である。ここで、 $R_3$ はアルキル基、アリール基等の1価の有機基であるが、好ましくはメチル基であり、また、 $R_3$ は同一分子中に1種類であっても、2種類以上であってもよい。

本発明のシリコン感光性樹脂は、ポリオルガノシルセスキオキサンの分子鎖末端の全部又は一部に、前記一般式(1)で示されるトリオルガノシリル基が結合している構造を有する。主鎖のポリオルガノシルセスキオキサンは、 $(R_2Si_2O_3)_n$ なる一般式で表わすことができ、ここで、 $n$ は繰り返し数を示し、2以上である。好ましいポリオルガノシルセスキオキ

サンは、前記一般式(2)で表わされる繰り返し単位を有し、その平均の繰り返し数が2~5000、より好ましくは5~500であるものである。また、R<sub>2</sub>は1価の有機基を示し、アリール基、アルキル基等の炭化水素基やアルコキシ基等であることができるが、好ましくは炭素数1~6のアルキル基又は置換基を有してもよいフェニル基であり、より好ましくはフェニル基である。

一般式(1)で表わされるトリオルガノシリル基において、Rは2価の有機基であり、上記一般式(1)で示されるようにRはカルボン酸の残基を含むものということができる。R'は2価の基又は直結合を示すが、2価の基の場合、他方はポリオルガノシルセスキオキサンの末端のSi-O-と結合している。このトリオルガノシリル基の末端t-ブチル基は光照射により酸発生剤より生成した酸に触れると脱離して、遊離のカルボキシル基が生成し、シリコーン樹脂のアルカリ溶解性が高められるので、この性質を利用してパターンニングが行われる。

2価の基Rを与えるカルボン酸としては、安息香酸、酢酸等のモノカルボン酸や多価カルボン酸があるが、多価カルボン酸が好ましい。多価カルボン酸としては、ピロメリット酸、トリメリット酸、フタル酸、ビフェニルジカルボン酸、ビフェニルテトラカルボン酸、ビフェニルヘキサカルボン酸、ベンゾフェノンジカルボン酸、ベンゾフェノンテトラカルボン酸、ジフェニルエーテルジカルボン酸、ジフェニルエーテルテトラカルボン酸、ジフェニルスルホンジカルボン酸、ジフェニルスルホンテトラカルボン酸、ジフェニルスルフィドジカルボン酸、ジフェニルスルフィドテトラカルボン酸、ベンズアニリドジカルボン酸、ベンズアニリドトリカルボン酸、ベンズアニリドテトラカルボン酸、ベンズアニリドペンタカルボン酸、シク

ロヘキサンジカルボン酸、シクロヘキセンジカルボン酸、こはく酸、アジピン酸、マレイン酸、フマル酸等が挙げられる。

多価カルボン酸の場合、 $t$ -ブチル基と結合しない他のカルボキシル基は、遊離のカルボキシル基 ( $\text{-COOH}$ ) として存在してもよく、また、エステル、塩等を形成していてもよい。特に、カルボキシル基の一つは、 $t\text{-Bu-OOC-R}_1\text{-COO-X-Si(Me)}_2\text{-}$  のようにエステル結合となって、2 価の基  $X$  を介し又は介さずして、 $\text{Si}$  と結合していることが好ましい。ここで、一般式 (1) の  $R$  は、 $\text{R}_1\text{-COO-X}$  に対応し、 $X$  はアルキレン、アリーレン等の 2 価の基又は直結合である。

多価カルボン酸が 3 価カルボン酸以上の場合、少なくとも 1 つのカルボキシル基が残るが、これはカルボキシル基のままであっても、エステルや塩のような中性の形となってもよい。そして、エステル等の中性の形で存在すれば、アルカリ溶解性が乏しいものとなる。光照射により酸発生剤から生成した酸により  $t$ -ブチル基との結合が外れてカルボン酸が生成し、アルカリ溶解性が高まるという現象を利用してパターンニングを行う場合、露光部分と未露光部分とのアルカリ溶解性の差が大きいことが望ましいため、遊離のカルボキシル基はエステルの形としておくことが好ましく、そのエステルの形としては  $t$ -ブチルアルコール又はその誘導体を反応させて得られる  $t$ -ブチルエステルの形が好ましい形の一つである。

$R$  は、カルボン酸残基を含むだけでなく、前記のようにポリオルガノシルセスキオキサンの末端を変性する末端変性剤の残基の一部を含み得る。好適な末端変性剤は、 $\text{X-Si(CH}_3)_2\text{-Y}$  で表わすことができ、 $Y$  は主鎖であるポリオルガノシルセスキオキサンと結合しうる官能基であり、 $X$  はカルボキシル基のような基と結合しうる官能基である。例えば、 $\text{X-S}$



$i \text{ (CH}_3\text{)}_2\text{--O--Si (CH}_3\text{)}_2\text{--Y}$  (但し、式中 Y は主鎖ポリオルガノシルセスキオキサンの末端 OH 基又は末端に生じる OM 基 (M はアルカリ金属) と反応可能なエポキシ基等の官能基である) で表わされる末端変性剤と、ポリオルガノシルセスキオキサンと反応させると、片側の Y を介して両者は結合し、末端が X のポリオルガノシルセスキオキサンが得られる。これに前記多価カルボン酸又はその誘導体を反応させると、X がエポキシ基の場合は、 $\text{--CH}_2\text{--CH (OH) --}$  を含む R が生成する。そして、X を種々変化させればエステル基、アミド基等の各種の基が生成する。もちろん、上記式において X と Y とは同一であっても、なくてもよく、ポリオルガノシルセスキオキサンの末端 (反応中に生じる末端基を含む) と反応性である基と R の他端側のカルボン酸基等の基又はその誘導体と反応性である基であればよい。なお、上記から明らかなように主鎖ポリオルガノシルセスキオキサンと一般式 (1) で表わされるトリオルガノシリル基は、シロキサン結合で結合している必要はなく、任意の基を介して結合していることができる。

本発明のシリコーン感光性樹脂は、公知の反応を利用して製造することが可能である。例えば、末端の変性は、ポリオルガノシルセスキオキサンが末端シラノール基を有する場合は、 $\text{X--Si (CH}_3\text{)}_2\text{--Cl}$  のようなモノハライドとを反応させて末端を変性する方法がある。好ましい末端変性法の 1 例としては、シラノール基を有しない籠型及び／又はラダー型のオクタフェニルセスキオキサンのようなポリオルガノシルセスキオキサンと、前記  $\text{X--Si (R}_3\text{)}_2\text{--O--Si (R}_3\text{)}_2\text{--X}$  で表わされるような末端変性剤とを、アルカリ金属触媒の存在下で反応させると、末端に X のような官能基を有するポリオルガノシルセスキオキサンが得られる。

また、ポリオルガノシルセスキオキサンの  $\text{Si}$  と、 $\text{X}-\text{Si}(\text{CH}_3)_2-\text{Y}$  のような末端変性剤の  $\text{Si}$  とは、交換反応を起こしやすいという性質を利用した方法も有効である。この場合、 $\text{X}$  及び  $\text{Y}$  の少なくとも一方はカルボキシル基と反応しうる基であればよい。また、 $\text{Y}$  をポリオルガノシルセスキオキサンの末端と反応し得る基として前記のような反応と交換反応を併用することも可能である。

末端変性剤で変性されたポリオルガノシルセスキオキサンから、本発明のシリコーン樹脂を製造する方法の好ましい 1 例としては、前記末端変性ポリオルガノシルセスキオキサンと、 $\alpha$ -ブチルアルコールと多価カルボン酸又はその酸無水物等の誘導体を反応させて得られた酸性エステルとを、第 4 級アンモニウム塩触媒の存在下で反応させる方法がある。

本発明のシリコーン樹脂は、GPC により測定されるポリスチレン換算の重量平均分子量が  $800 \sim 100,000$ 、好ましくは  $5,000 \sim 50,000$  であることがよい。このシリコーン樹脂は常温固体であり、エステル類、エーテル類等多くの有機溶媒に可溶である。また、本発明のシリコーン樹脂は、一般式 (1) で表されるトリオルガノシリル基を、一般式  $(\text{C}_6\text{H}_5\text{SiO}_{3/2})_n$  で表されるポリオルガノシロキサンの置換可能な末端の全部又は 10% 以上に有することが好ましく、例えば  $n$  が  $4 \sim 20$  当たり 1 つ、好ましくは  $n$  が  $2 \sim 8$  当たり 1 つ有することが好ましい。

本発明のシリコーン樹脂は、ポジ型レジスト材等に好適に使用できる。このような用途に使用する場合、酸発生剤を配合する他、その感度を高めたり、耐熱性、耐プラズマ性等を高めるため、各種添加剤を配合することができる。

本発明の感光性樹脂組成物には、必須の添加剤として露光により酸を発

生する酸発生剤が加えられる。酸発生剤の例としては、トリフェニルスルホニウムトリフルオロスルホナート、トリフェニルスルホニウムトリフルオロメタンアンチモナート、トリフェニルスルホニウムベンゾスルホナート、シクロヘキシルメチル（2-オキソシクロヘキシル）スルホニウムトリフルオロメタンスルホナート等のスルホニウム塩化合物、ジフェニルヨードニウムトリフルオロメタンスルホナート等のヨードニウム塩、N-ヒドロキシスクシンイミドトリフルオロメタンスルホナート等が挙げられるが、これらに限定されない。なお、酸発生剤の化学式や作用については、前記特開平8-193167号公報やCMC社発行の「実用高分子レジスト材料の新展開」p57などに詳しい。酸発生剤の配合量は、全固形分中の0.2～25重量%の範囲が一般的である。

粘度を調整するため有機溶剤を用いることがよく、好ましい溶剤としてはメチルセロソルブアセテート、プロピレングリコールモノエチルエーテルアセテート、乳酸メチル、酢酸エトキシエチル、ピルビン酸メチル、メトキシプロピオン酸メチル、N-メチルーピロリジノン、シクロヘキサノン、メチルエチルケトン、ジオキサン、エチレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジエチレングリコールモノエチルエーテル等が挙げられるが、これらに限定されない。

本発明の感光性樹脂組成物は、必須成分として感光性の前記シリコーン樹脂と酸発生剤を含み、且つ溶剤を含むことが多いが、この他に必要に応じて界面活性剤、色素、安定剤、塗布改良剤、無機粉等を配合することもできる。

本発明の感光性のシリコーン樹脂及びこれを含む樹脂組成物は、レジスト材、PDPの障壁材等として使用可能である。レジスト材として使用する

る形態には制限はないが、多層レジスト法に用いられるレジスト材として好適である。

多層レジスト法は、基板上にノボラック樹脂等の酸素プラズマにより容易にドライエッチングされる材料をスピンコートし、この上に本発明の材料を塗布し、これをエキシマレーザ等で露光して、酸発生剤から酸を生じせしめてシリコーン樹脂を解離させ、アルカリ水溶液で現像して、パターンニングし、次いで酸素プラズマ処理により下層レジストをエッチングしてアスペクト比の高いパターンを得る方法である。

また、PDPの障壁材の製造方法としては、サンドブラスト法、埋めこみ法、フォトペースト法等が知られているが、いずれも感光性を付与したレジスト材を使用するものであり、本発明の材料はこのレジスト材として使用することができる。特に、このレジストが除去されることなく残るフォトペースト法等の方法に適用される場合、本発明の材料が有する耐プラズマ性が優れるという効果を十分に生かすことができる。

### 発明の最良の実施の形態

#### 実施例 1

グリシジル基含有フェニルシルセスキオキサンは、PCT/JP98/01098 (WO98/41566) 及び特開平 10-251407 号公報記載の参考例 1 と実施例 3 を参考にして合成した。

#### 合成例 1

[籠型オクタフェニルシルセスキオキサンの合成]

105 g のフェニルトリクロロシラン (0.5 モル) をトルエン 500 c c に溶解し、水で加水分解が完了するまで振とうする。加水分解生成物を水洗後、

市販の 30% ベンジルトリメチルアンモニウムヒドロキシドのメタノール溶液を 16.6 c c (0.03 モル) を加え、この混合物 4 時間還流温度に加熱した。次いで、全体を冷却し、約 96 時間放置した。この時間経過後、得られたスラリーを再び 24 時間還流温度にて加熱し、次いで冷却し、濾過した。かくして籠型オクタフェニルシルセスキオキサン( $\text{C}_6\text{H}_5\text{SiO}_{3/2}$ )<sub>8</sub> 約 75 g を得た。赤外吸収スペクトル分析を測定したところ、 $\text{Si}-\text{C}_6\text{H}_5$  に帰属される吸収が  $1595\text{cm}^{-1}$  及び  $1430\text{cm}^{-1}$  に、 $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$  の逆対称伸縮振動に帰属される吸収が  $1135\text{cm}^{-1}$  に観測され、 $\text{Si}-\text{OH}$  に帰属される吸収は  $3400\text{cm}^{-1}$  に観測されなかった。 $^{29}\text{Si}$ -MASNMR を測定したところ、 $-77\text{ppm}$  に籠型オクタフェニルシルセスキオキサン中の Si 核のシャープなシグナルが 1 本のみ観測された。また、*o*-ジクロロベンゼンを展開液とした GPC によるポリスチレン換算数平均分子量  $M_n$  は 760 であった。

## 合成例 2

### [グリシジル基含有フェニルシルセスキオキサンオリゴマーの合成]

反応容器中に籠型オクタフェニルシルセスキオキサン 100 g と 1,3-ビス(3-グリシドキシプロピル)-1, 1, 3, 3-テトラメチルジシロキサン 70.3 g とトルエン 400 g とテトラメチルアンモニウムヒドロキシド 5 水和物 4 g を仕込み、この混合物を還流温度にて強撹拌し 7 時間加熱した。仕込み時の反応液は籠型オクタフェニルシルセスキオキサンの白色粉末がトルエンに溶解しないため白色の懸濁液を呈しているが、反応が進むにつれて徐々に溶解していき 7 時間後には殆どすべて溶解し無色透明溶液となった。この溶液を室温まで冷却し沈降している不溶な未反応のテトラメチルアンモニウムヒドロキシドを濾過により除去した後、この溶液を過剰のメタノール 2000 g 中に注ぎ込み、末端にグリシドキシ基を有したフェニルシルセ

スキオキサンを再沈せしめた。この粘ちような沈殿生成物をさらにメタノールにて洗浄し、メタノールと残存トルエンを留去して薄黄色透明な粘ちよう物であるグリシジル基含有フェニルシルセスキオキサンオリゴマー 120 g を得た。このエポキシ当量を塩酸・ピリジン法により測定したところ 945 g/eq であった。GPC 測定によるポリスチレン換算数平均分子量  $M_n$  は 20,000 であった。

### 合成例 3

#### [ t-ブチルエステル基含有カルボン酸化合物の合成 ]

1 リットル三つ口フラスコに無水マレイン酸 62 g とナトリウム t-ブチルアルコール 74 g、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート 400 g を仕込み、触媒としてナトリウムメトキシド 0.44 g を添加後、150℃ で 2 時間加熱還流させる。室温まで放冷した後、濃塩酸を 0.85 g 添加させる。得られる茶かっ色の反応溶液をナス型フラスコにいれ、エバポレーターにて溶剤であるプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテートを留去する。その後、ジクロロメタン 600 g に溶解させ、500 g の蒸留水にて 3 回水洗した。ジクロロメタンを蒸発除去して茶褐色の粘ちような液体である t-ブチルエステル基を有したカルボン酸を収率 90% で得た。

### 合成例 4

#### [ t-ブチルエステル基を有したフェニルシルセスキオキサンの合成 ]

合成例 2 で合成したグリシジル基含有フェニルシルセスキオキサン 100 g と合成例 3 で合成した t-ブチルエステル基含有カルボン酸化合物 14 g 及び反応溶剤としてプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート 100 g、触媒としてテトラエチルアンモニウムブロミド 0.2 g を三つ口フラスコに仕込み、90℃ にて 2 時間加熱攪拌し、茶褐色の粘ちような液体で t-

ブチルエステル基を有したフェニルシルセスキオキサンを収率 80%で合成した。

## 実施例 2

### (1) 本樹脂を用いたパターンニング実験

実施例 1 で得られた *t*-ブチルエステル基を有したフェニルシルセスキオキサンのプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート溶液 100 g に、光酸発生剤であるトリフェニルスルホニウムトリフレート ( $\text{Ph}_3\text{S}^+\text{OTf}^-$ ) 1 g を溶解した感光性樹脂溶液を用いてガラス基板にスピコートした後 70°C で 15 分間乾燥することにより厚さ 0.3  $\mu\text{m}$  の膜を形成させた。これにマスクを介して紫外線 (248nm) を照射し、3%テトラメチルアンモニウムヒドロキシド水溶液にて現像することで明瞭なパターンニング (ラインアンドスペース 0.3  $\mu\text{m}$ ) を得ることができ、本樹脂がポジ型の現像性を有することを確認した。

### (2) 本樹脂を用いた 2 層レジストパターンニング実験

シリコンウエハー上に厚さ 1  $\mu$  のクレゾールノボラック系の下層レジスト膜と実施例 1 で合成した厚さ 0.1  $\mu$  の *t*-ブチルエステル基を有したフェニルシルセスキオキサンの上層ポジ型レジスト膜をスピコートにより形成させ、遠紫外 (193nm) エキシマレーザーにて露光した後、2%テトラメチルアンモニウムヒドロキシド水溶液にて現像することで上層部に明瞭なパターンニング (ラインアンドスペース 0.1  $\mu$ ) の形成が可能であった。その後、 $\text{O}_2$ -RIE 処理により下層レジストをエッチングし、次いで  $\text{CF}_4$ -RIE 処理により上層レジストを除去することでシリコンウエハー上に幅 0.1  $\mu\text{m}$  でアスペクト比 10 のクレゾールノボラック系の明瞭なパターンニングが形成できた。

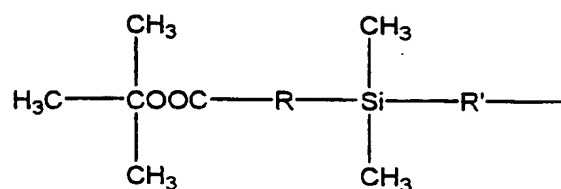
### 産業上の利用可能性

本発明のシリコーン樹脂及びこれを含む組成物は耐プラズマ性に優れたレジストを与えるため電子デバイスの精密パターンニングを可能とする。また、PDPの障壁材としても優れる。また、本発明のシリコーン樹脂及びこれを含む組成物は、多層レジスト法用のレジスト材やPDP障壁形成用レジスト材として優れた性能を示す他、耐プラズマ性（耐O<sub>2</sub>-RIE）性に優れると共に、これを用いてパターンを形成したとき、高いアスペクト比を得ることができるレジスト材となる。



## 請求の範囲

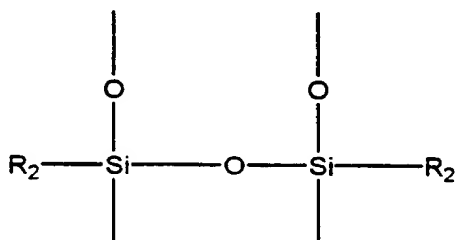
(1) ポリオルガノシルセスキオキサンの分子鎖末端の全部又は一部に、下記一般式(1)で表わされるトリオルガノシリル基が結合していることを特徴とするシリコーン樹脂。



(1)

(但し、式中Rは2価の有機基を示し、R'は2価の基又は直結合を示す)

(2) ポリオルガノシルセスキオキサンが下記一般式(2)で表わされる繰り返し単位からなり、且つ、平均の繰り返し数が2～5000である請求項1記載のシリコーン樹脂。



(2)

(但し、式中R<sub>2</sub>は置換基を有してもよいフェニル基を示す)

(3) ポリオルガノシルセスキオキサンが、ラダー型、籠形及び籠形とラダー型の混在型から選ばれる1種又は2種以上の混合物であり、GPCにより測定されるポリスチレン換算の重量平均分子量M<sub>w</sub>が800～100,000である請求項1記載のシリコーン樹脂。

(4) 一般式1において、Rが-R<sub>1</sub>COOX<sub>1</sub>-又は-R<sub>1</sub>COOX<sub>1</sub>-Si(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>

- O - (但し、 $R_1$ は多価カルボン酸又はその誘導体から生じる2価の残基、 $X_1$ は2価の基を示す)である請求項1記載のシリコン樹脂。

(5) ポリオルガノシルセスキオキサンと、 $X - Si(R_3)_2 - Y$ 又は $X - Si(R_3)_2OSi(R_3)_2 - Y$  (但し、 $X$ 及び $Y$ はカルボキシシル基と結合しうる基又は主鎖ポリオルガノシルセスキオキサンの末端OH基又は末端に生じるOM基 ( $M$ はアルカリ金属)と反応可能な官能基、 $R_3$ は1価の有機基を示す)とを反応させて、ポリオルガノシルセスキオキサンの末端の全部又は一部に $X$ 又は $Y$ を末端に有する末端変性ポリオルガノシルセスキオキサンを生成させ、次にこれに $t$ -ブチルアルコールと多価カルボン酸若しくはその誘導体と反応させて得られた酸性エステルとを反応させてポリオルガノシルセスキオキサンの分子鎖末端の全部又は一部に一般式(1)で表わされるトリオルガノシリル基が結合しているシリコン樹脂とすることを特徴とする請求項1記載のシリコン樹脂の製造方法。

(6) 請求項1～4のいずれか一つに記載のシリコン樹脂に、露光により酸を発生する酸発生剤を配合したことを特徴とする感光性樹脂組成物。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/01955

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C08G77/38, 77/14, 77/06, C08L83/08

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C08G77/38, 77/14, 77/06, C08L83/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO, 98/41566, A (NIPPON STEEL CHEMICAL CO, LTD), 24 September, 1998 (24.09.98), Claims & JP, 10-251407, A	1-6
A	JP, 11-60734, A (SHOWA DENKO K.K.), 05 March, 1999 (05.03.99), Claims (Family: none)	1-6

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
02 May, 2000 (02.05.00)

Date of mailing of the international search report  
16 May 2000 (16.05.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08G77/38, 77/14, 77/06, C08L83/08

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08G77/38, 77/14, 77/06, C08L83/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	WO, 98/41566, A (NIPPON STEEL CHEMICAL CO, LTD) 24. 9月. 1998 (24. 09. 98) Claims & JP, 10-251407, A	1-6
A	JP, 11-60734, A (昭和電工株式会社) 5. 3月. 1999 (05. 03. 99) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-6

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 05. 00

国際調査報告の発送日

16.05.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

官坂初男

印

4J

7729

電話番号 03-3581-1101 内線 3493



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
 US Department of Commerce  
 United States Patent and Trademark  
 Office, PCT  
 2011 South Clark Place Room  
 CP2/5C24  
 Arlington, VA 22202  
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
 in its capacity as elected Office

<b>Date of mailing</b> (day/month/year) 03 November 2000 (03.11.00)	
<b>International application No.</b> PCT/JP00/01955	<b>Applicant's or agent's file reference</b> NTK00-1241
<b>International filing date</b> (day/month/year) 29 March 2000 (29.03.00)	<b>Priority date</b> (day/month/year) 30 March 1999 (30.03.99)
<b>Applicant</b> FUJIYAMA, Takeshi et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:  
 10 October 2000 (10.10.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

<b>The International Bureau of WIPO</b> 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	<b>Authorized officer</b>  Diana Nissen  Telephone No.: (41-22) 338.83.38
--	---





3T  
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference NTK00-1241	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/01955	International filing date (day/month/year) 29 March 2000 (29.03.00)	Priority date (day/month/year) 30 March 1999 (30.03.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08G 77/38, 77/14, 77/06, C08L 83/08		
Applicant NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD.		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>3</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of _____ sheets.</p>	
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>	

Date of submission of the demand 10 October 2000 (10.10.00)	Date of completion of this report 18 October 2000 (18.10.2000)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.  
PCT/JP00/01955

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the **elements** of the international application:\*

- ☒ the international application as originally filed
- ☐ the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the claims:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

### 2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

### 4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

ational application No.

PCT/JP00/01955

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-6	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-6	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-6	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

The silicone resin, manufacturing method thereof and photosensitive resin composition containing the same disclosed in claims 1-6 are neither disclosed in any of the documents cited in the ISR nor obvious to a person skilled in the art.



IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re International Application of

Takeshi FUJIYAMA et al.

International Serial No. : PCT/JP00/01955

International filing date : March 29, 2000

For : Silicone Resins and Photosensitive Resin Compositions Containing  
The Same

VERIFICATION OF TRANSLATION

Honorable Commissioner of Patents and Trademarks

Washington, D.C. 20231

Sir :

I, Nobuyoshi TAKAHASHI, residing at 504-52, Shimoyamaguchi,  
Hayama-machi, Miura-gun, Kanagawa-ken, Japan, declare and state :

- (1) that I know well both the Japanese and English languages;
- (2) that I translated the above-identified International Application from Japanese to English;
- (3) that the attached English translation is a true and correct translation of the above-identified International Application to the best of my knowledge and belief; and
- (4) that all statements made of my own knowledge are true and that all statements made on information and belief are believed to be true, and further that these statements are made with the knowledge that willful false statements and the like are punishable by fine or imprisonment, or both, under 18 USC 1001, and that such false statements may jeopardize the validity of the application or any patent issuing thereon.

Date : July 30, 2001

Nobuyoshi Takahashi  
Signature: Nobuyoshi TAKAHASHI

1987-1988



REC'D 06 NOV 2000

WIPO

PCT

PCT

## 国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
[PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 NTK00-1241	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/ IPEA/416）を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/01955	国際出願日 (日.月.年) 29.03.00	優先日 (日.月.年) 30.03.99
国際特許分類 (IPC) Int. Cl <sup>7</sup> C08G77/38, 77/14, 77/06, C08L83/08		
出願人 (氏名又は名称) 新日鐵化学株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。
- ☐ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。  
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)  
この附属書類は、全部で \_\_\_\_\_ ページである。

3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不成作
- IV ☐ 発明の単一性の欠如
- V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☐ ある種の引用文献
- VII ☐ 国際出願の不備
- VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 10.10.00	国際予備審査報告を作成した日 18.10.00	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 宮坂 初 男	4 J 7 7 2 9
電話番号 03-3581-1101 内線 3493		



## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 出願時に提出されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 出願時に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)



V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	1-6	有
	請求の範囲		無
進歩性(IS)	請求の範囲	1-6	有
	請求の範囲		無
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲	1-6	有
	請求の範囲		無

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

請求の範囲1-6に記載されたシリコン樹脂、その製造方法及びこれを含有する感光性樹脂組成物は国際調査報告に列記されたいずれの文献にも記載されておらず、当業者にとって自明なものでもない。



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/01955

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C08G77/38, 77/14, 77/06, C08L83/08

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C08G77/38, 77/14, 77/06, C08L83/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO, 98/41566, A (NIPPON STEEL CHEMICAL CO, LTD), 24 September, 1998 (24.09.98), Claims & JP, 10-251407, A	1-6
A	JP, 11-60734, A (SHOWA DENKO K.K.), 05 March, 1999 (05.03.99), Claims (Family: none)	1-6

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
02 May, 2000 (02.05.00)

Date of mailing of the international search report  
16 May 2000 (16.05.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.





3T  
Translation:

PATENT COOPERATION TREATY  
**PCT**

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference NTK00-1241	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/01955	International filing date (day/month/year) 29 March 2000 (29.03.00)	Priority date (day/month/year) 30 March 1999 (30.03.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08G 77/38, 77/14, 77/06, C08L 83/08		
Applicant NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.  
☐ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).  
These annexes consist of a total of \_\_\_\_\_ sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 10 October 2000 (10.10.00)	Date of completion of this report 18 October 2000 (18.10.2000)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/01955

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the elements of the international application:\*

☒ the international application as originally filed

☐ the description:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

☐ the claims:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

☐ the drawings:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

☐ the sequence listing part of the description:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

### 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).

☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).

☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

☐ contained in the international application in written form.

☐ filed together with the international application in computer readable form.

☐ furnished subsequently to this Authority in written form.

☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.

☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.

☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

### 4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

☐ the description, pages \_\_\_\_\_

☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_

☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/01955

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-6	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-6	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-6	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

The silicone resin, manufacturing method thereof and photosensitive resin composition containing the same disclosed in claims 1-6 are neither disclosed in any of the documents cited in the ISR nor obvious to a person skilled in the art.



E P

P C T

国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第40、41条)  
[PCT 18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 NTK00-1241	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/01955	国際出願日 (日.月.年) 29.03.00	優先日 (日.月.年) 30.03.99
出願人(氏名又は名称) 新日鐵化学株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT 18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 2 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 \_\_\_\_\_ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。





## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C08G77/38, 77/14, 77/06, C08L83/08

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C08G77/38, 77/14, 77/06, C08L83/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	WO, 98/41566, A (NIPPON STEEL CHEMICAL CO, LTD) 24. 9月. 1998 (24. 09. 98) Claims & JP, 10-251407, A	1-6
A	JP, 11-60734, A (昭和電工株式会社) 5. 3月. 1999 (05. 03. 99) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-6

☐ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

- 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献  
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 05. 00

国際調査報告の発送日

16.05.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

宮坂 初男

印

4 J

7729

電話番号 03-3581-1101 内線 3493

